(19) 世界知的所有権機関 国際事務局



- I COURT BILLERY IN BERKE TOUR BORN BORN BORN BERKET IN BERKET OF BE ENGLE HOUR HOUR BORN BORN BORN HER HUN (DATA

(43) 国際公開日 2004 年9 月30 日 (30.09,2004)

PCT

(10) 国際公開番号 WO 2004/083117 A1

(51) 国際特許分類7:

C01B 11/22

(21) 国際出願番号:

PCT/JP2004/003491

(22) 国際出願日:

2004年3月16日(16.03.2004)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

(30) 優先権データ:

特願2003-075248 2003年3月19日(19.03.2003)

(71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 住友化学 工業株式会社(SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED) [JP/JP]; 〒5418550 大阪府大阪市中央区北 浜四丁目5番33号 Osaka (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 吉川 享志 (YOSHIKAWA, Kouji) [JP/JP]; 〒5600021 大阪府豊中 市本町 9 - 5 - 1 Osaka (JP).

(74) 代理人: 榎本 雅之、外(ENOMOTO, Masayuki et al.); 〒5418550 大阪府大阪市中央区北浜四丁目 5番33号 住友化学知的財産センター株式会社内 Osaka (JP). (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

一 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: METHOD FOR PREPARING DISODIUM PARAPERIODATE

(54) 発明の名称: パラ過ヨウ素酸ニナトリウムの製造方法

(57) Abstract: A method for preparing disodium paraperiodate, characterized in that sodium iodate, iodic acid or a mixture thereof is reacted with sodium hypochlorite using sodium hydroxide to provide a reaction mixture, and then the pH of the reaction mixture is adjusted to the range of 5 to 10.

○ (57) 要約: ヨウ素酸ナトリウム、ヨウ素酸またはそれらの混合物と次亜塩素酸ナトリウムを水酸化ナトリウムを用いて反応させて生成する反応混合物のpHをpH5以上10以下のpH範囲にすることを特徴とするパラ過ヨウ素酸ニナトリウムの製造方法を提供する。



)83117

明 細 書パラ過ヨウ素酸二ナトリウムの製造方法

技術分野

5 本発明は、パラ過ヨウ素酸二ナトリウムの製造方法に関する。

背景技術

メタ過ヨウ素酸ナトリウム($NaIO_4$)や過ヨウ素酸(HIO_4)は、種々の有機化合物を酸化する際の有用な酸化剤であるが比較的高価であるため、これらを用いた酸化反応において副生するヨウ素酸ナトリウム ($NaIO_3$)やヨウ素酸 (HIO_3)を、塩素ガスを用いて、パラ過ヨウ素酸二ナトリウム ($Na_2H_3IO_6$)へと酸化し、これを濾過して単離回収し、さらにメタ過ヨウ素酸塩へ変換して再利用を図る方法が知られていた(特許第2912444号公報など)。

15 発明の開示

10

本願発明の方法によれば、毒性の高い塩素ガスを用いることがないためそのための専用設備を必要とせず、より簡便な設備で、かつ労働安全衛生上有利にパラ過ヨウ素酸ニナトリウムを得ることができる。

すなわち本発明は、ヨウ素酸ナトリウム、ヨウ素酸またはそれらの混合物と次 20 亜塩素酸ナトリウムを水酸化ナトリウムを用いて反応させて生成する反応混合物 のpHをpH5以上10以下のpH範囲にすることを特徴とするパラ過ヨウ素酸 ニナトリウムの製造方法(以下、「本発明製造方法」と記す。)を提供するもので ある。

25 発明を実施するための最良の形態

本発明製造方法には、ヨウ素酸ナトリウム単独を用いてもよいし、ヨウ素酸単独を用いてもよいし、それらの混合物を用いてもよい。ヨウ素酸ナトリウムとヨウ素酸の混合物を用いる場合のその混合割合は特に制限されない。ヨウ素酸ナトリウムやヨウ素酸は、市販されているものを用いてもよいし、例えば I n o r g

anic Synthesis Collective Vol. I, p. 16 8等公知の方法に準じて、ヨウ素等の酸化段階の低いヨウ素化合物を塩素酸ナトリウム水溶液中で酸化することにより得られるヨウ素酸ナトリウムを用いてもよいし、より酸化段階の高いヨウ素化合物を還元して得られるヨウ素酸ナトリウムを用いてもよい。

また、例えばルテニウム触媒の存在下にオレフィン類とメタ過ヨウ素酸ナトリ ウムや過ヨウ素酸を反応させ、前記オレフィン類の炭素-炭素二重結合を酸化切 断する方法やジオール類とメタ過ヨウ素酸ナトリウムや過ヨウ素酸を反応させ、 炭素-炭素結合を酸化切断する方法等に代表されるメタ過ヨウ素酸ナトリウムや 過ヨウ素酸を酸化剤として有機化合物と反応させる酸化反応において、生成する 10 ヨウ素酸ナトリウム、ヨウ素酸またはそれらの混合物を用いてもよい。前記副 生するヨウ素酸ナトリウム、ヨウ素酸またはそれらの混合物は、通常反応工程か ら排出される排水中に含まれており、前記排水をそのまま本発明に用いてもよい し、前記排水から副生ヨウ素酸ナトリウムや副生ヨウ素酸を取り出して本発明に 用いてもよい。なお、前記排水には、副生したヨウ素酸ナトリウムやヨウ素酸以 15 外に、例えば硝酸ナトリウム、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、硫酸ナト リウム、硫酸水素ナトリウム、亜硫酸ナトリウム、亜硫酸水素ナトリウム、塩化 ナトリウム、臭化ナトリウム、ヨウ化ナトリウム、ヨウ素等の無機化合物、ルテ ニウム触媒をはじめとする触媒類等が含まれていてもよい。

20 次亜塩素酸ナトリウムは、通常水溶液が用いられ、その使用量は、ヨウ素酸ナトリウム、ヨウ素酸またはそれらの混合物中のヨウ素酸イオン1モルに対して、通常1~3モルであり、好ましくは1~1.2モルである。

水酸化ナトリウムは、通常水溶液が用いられる。ヨウ素酸ナトリウム単独を用いる場合の水酸化ナトリウムの使用量は、ヨウ素酸ナトリウム1モル当たり、通常0.5モル以上であり、好ましくは0.8モル以上、さらに好ましくは1以上である。ヨウ素酸単独を用いる場合の水酸化ナトリウムの使用量は、ヨウ素酸1モル当たり、通常1.5モル以上、好ましくは1.8モル以上、さらに好ましくは2モル以上である。あるいは、ヨウ素酸を水酸化ナトリウム、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム等を用いて予め中和し、ヨウ素酸ナトリウムとしてから用い

15

ても良い。ヨウ素酸ナトリウムとヨウ素酸の混合物を用いる場合の水酸化ナトリウムの使用量は、その混合物中のヨウ素酸ナトリウムとヨウ素酸の含有量に応じて、前記の量比に基づき適宜決定するかあるいは、ヨウ素酸ナトリウムを前記のように中和して得られるヨウ素酸ナトリウムに適した量でもよい。

ヨウ素酸ナトリウム、ヨウ素酸またはそれらの混合物と次亜塩素酸ナトリウムの反応は、通常水中で実施される。水の使用量は、ヨウ素酸ナトリウム、ヨウ素酸またはそれらの混合物1重量部に対して、通常2~10重量倍である。前記したように、有機化合物の酸化反応の反応工程から排出される副生ヨウ素酸ナトリウムや副生ヨウ素酸を含む排水を用いる場合には、水を別途加えてもよいし、そのまま前記排水と次亜塩素酸ナトリウムと水酸化ナトリウムを接触し混合してもよい。

本発明製造方法では、水酸化ナトリウムおよび次亜塩素酸ナトリウムの量を前記のごとく適宜選択して実施される。その実施態様としては、例えば、次亜塩素酸ナトリウムと、水酸化ナトリウムを同時にヨウ素酸ナトリウム、ヨウ素酸またはそれらの混合物に加えるか、あるいは次亜塩素酸ナトリウムと水酸化ナトリウムの混合液をヨウ素酸ナトリウム、ヨウ素酸またはそれらの混合物に加えてもよいし、その逆の方法で混合してもよく、混合方法は特にこれらに限定されない。反応温度は、通常50~100℃である。反応時間は、反応温度によって異なるが、通常2~10時間である。

20 さらに詳しくは、例えば、反応液のpH範囲をpH5以上10以下の好ましい 範囲にするための水酸化ナトリウムの好ましい使用量は、ヨウ素酸ナトリウム1 モル当たり0.8モル以上であり、ヨウ素酸1モル当たり1.8モル以上であり、 より好ましくは、水酸化ナトリウムの使用量は、ヨウ素酸ナトリウム1モル当た り1モル以上であり、ヨウ素酸1モル当たり2モル以上である。水酸化ナトリウ ムの使用量の上限は特にないが、通常、ヨウ素酸ナトリウム1モルまたはヨウ素 酸1モルまたは両者の総計1モル当たりの水酸化ナトリウムの使用量は、3モル 以下である。

上記のような実施態様のほかに、本発明製造方法には、例えば、水酸化ナトリウムの使用量を考慮して、水酸化ナトリウムを適宜、追加するかもしくは炭酸ナ

トリウム等の塩基を加えるか、あるいは、適宜、塩酸、硫酸、硝酸等の酸を加えて、反応混合物のpHをpH5以上10以下の範囲、好ましくは5以上7未満の範囲に調整する態様も含まれる。本発明製造方法には、次亜塩素酸ナトリウムを水酸化ナトリウムの存在下に、ヨウ素酸ナトリウム、ヨウ素酸またはそれらの混合物と反応させ、次いで生成する反応混合液のpH範囲を、好ましくは、pH5以上7未満の範囲となるよう、例えば、上記のような酸を用いて、調整する実施態様も含まれる。

かくして得られたパラ過ヨウ素酸二ナトリウムの結晶を含むスラリーはそのま ま次の工程に供するかあるいは、デカンテーションや濾過などの方法により目的 物の結晶を集めて取り出すこともできる。

析出したパラ過ヨウ素酸二ナトリウムの結晶の濾過処理等の温度は、通常 5 0℃以下、好ましくは 3 0℃以下である。

かくして得られたパラ過ヨウ素酸ニナトリウムは、濾過等の方法で単離後あるいは場合によってはスラリーのまま、例えば硝酸、硫酸等の酸を作用させ、その水溶液をpH2以上2.5以下の範囲にすることによりメタ過ヨウ素酸ナトリウムに容易に変換したのち、濾過によりこれを収率よく単離することもできる。

産業上の利用可能性

本発明によれば、ヨウ素酸ナトリウム、ヨウ素酸またはそれらの混合物から、 20 工業的に有利にパラ過ヨウ素酸二ナトリウムを得ることができる。

実施例

10

15

25

以下、実施例により本発明をさらに詳細に説明するが、本発明はこれら実施例に限定されない。なお、ナトリウム(Na)およびヨウ素(I)含量は、それぞれ水(希硝酸)溶解-イオンクロマトグラフ法、フラスコ燃焼-イオンクロマトグラフ法で分析した。

実施例1

ヨウ素酸ナトリウム200.5gに水804.8gを加えた後、30重量%水

酸化ナトリウム水溶液 146.1 g および 12.8 重量%次 亜塩素酸ナトリウム水溶液 648 g を、内温 80 ℃で滴下し、同温度で 4時間攪拌、反応させた。その後、内温 30 ℃以下まで冷却し、60 重量%硝酸を加え、pH5 に調整した。析出結晶を濾取し、減圧条件下で乾燥処理し、結晶 269.6 g を得た。取得した結晶の組成を分析したところ、Na:17.0%、I:46.4%、Na/I 組成比 =2.0であり、パラ過ヨウ素酸二ナトリウムであることを確認した。収率は、98%であった。

実施例2

10 ヨウ素酸ナトリウム20.6gに水81.2gを加えた後、30重量%水酸化ナトリウム水溶液10.3gおよび12.8重量%次亜塩素酸ナトリウム水溶液64.7gを、内温80℃で滴下し、同温度で4時間攪拌、反応させた。その後、内温30℃以下まで冷却するとpHは3.9であったため、30重量%水酸化ナトリウムを加え、pHを5.3に調整した。析出結晶を濾取し、減圧条件下で15 乾燥処理し、結晶24gを得た。取得した結晶の組成を分析したところ、Na:16.1%、I:47.4%、Na/I組成比:1.9であり、パラ過ヨウ素酸ニナトリウムであることを確認した。収率は、85%であった。

実施例3

20 ヨウ素酸ナトリウム20gに水80gを加えた後、30重量%水酸化ナトリウム水溶液12.6gおよび12.8重量%次亜塩素酸ナトリウム水溶液64.6gを、内温80℃で滴下し、同温度で4時間攪拌、反応させた。その後、内温30℃以下まで冷却するとpHは6.9であったので、そのまま析出結晶を濾取し、減圧条件下で乾燥処理し、結晶26.9gを得た。取得した結晶の組成を分析したところ、Na:17.0%、I:46.3%、Na/I組成比:2.0であり、パラ過ヨウ素酸二ナトリウムであることを確認した。収率は、98%であった。

実施例4

ヨウ素酸ナトリウム20.1gに水80gを加えた後、30重量%水酸化ナトリウム水溶液14.7gおよびI2.8重量%次亜塩素酸ナトリウム水溶液64.5gを、内温80℃で滴下し、同温度で4時間攪拌、反応させた。その後、内温30℃以下まで冷却するとI1.7であったので、60重量%硝酸を加え、I1.7であり、7に調整した。析出結晶を濾取し、減圧条件下で乾燥処理し、結晶27gを得た。取得した結晶の組成を分析したところ、I1.47.7%、I1.47.7%、I1.47.7%、I1.47.7%、I1.47.7%、I1.47.7%、I1.47.7%、I1.47.7%、I1.47.7%、I1.9であり、I1.47.7%、I1.47.7%、I1.47.7%、I1.47.7%、I1.47.7%、I1.47.7%、I1.47.7%、I1.47.7%、I1.47.7%、I1.47.7%、I1.47.7%、I1.47.7%、I1.5% I1.5% I1.5%

10 比較例 1

ヨウ素酸ナトリウム50gに水200.5gを加えた後、30重量%水酸化ナトリウム水溶液68.5gおよび12.8重量%次亜塩素酸ナトリウム水溶液209.2gを、内温80℃で滴下し、同温度で4時間攪拌、反応させた。その後、内温30℃以下まで冷却するとpHは13であった。そのまま析出結晶を適取し、減圧条件下で乾燥処理し、結晶73.5gを得た。取得した結晶の組成を分析したところ、Na:24.4%、I:42.4%、Na/I組成比:3.2であり、パラ過ヨウ素酸二ナトリウムではなく、パラ過ヨウ素酸三ナトリウムであることを確認した。

20 参考例1

パラ過ヨウ素酸二ナトリウム44.4gと水203gを混合し、内温0℃で、60重量%硝酸17.2gを加え、メタ過ヨウ素酸ナトリウムを含む水溶液を調製した。同温度で、塩化ルテニウム(III)水和物32.4mg、トランス-3,3ージメチル-2-(2-メチル-1-プロペニル)シクロプロパンカルボン酸メチル14.2gおよびトルエン144gを加え、新たにメタ過ヨウ素酸ナトリウム1.7gを加えた後、25.5時間攪拌、反応させた。反応終了後、イソプロピルアルコール2.4gを加え、残存するメタ過ヨウ素酸ナトリウムを還元した後、20重量%炭酸ナトリウム水溶液を加え、中和処理した。内温70℃で、活性炭0.2gを加え、約30分攪拌後、同温度で濾過処理した。濾液を静置

後、分液処理し、トランス-3,3-ジメチル-2-ホルミルシクロプロパンカルボン酸メチルを含む有機層と副生ヨウ素酸ナトリウムを含む水層を得た。前記水層を減圧条件下、一部濃縮処理し、該水層からアセトン等の親水性有機化合物を除去し、副生ヨウ素酸ナトリウムを含む排水を得た。なお、前記排水には、反応で用いたルテニウム触媒も含まれていた。

実施例5

10

15

参考例1で得た副生ヨウ素酸ナトリウムを含む排水に、30重量%水酸化ナトリウム水溶液28.7gおよび12.8重量%次亜塩素酸ナトリウム水溶液109.8gを、内温80℃で滴下し、同温度で4時間攪拌、反応させた。その後、内温30℃以下まで冷却し、60重量%硝酸を加え、pH6に調整した。析出結晶を濾取し、減圧条件下で乾燥処理し、結晶45.7gを得た。取得した結晶の組成を分析したところ、Na:17.4%、I:46.2%、Na/I組成比=2.1であり、パラ過ヨウ素酸二ナトリウムであることを確認した。収率は、98%であった。

実施例6

実施例1と同様の操作により取得したパラ過ヨウ素酸二ナトリウム44.4g と水203gを混合し、内温0℃で、60重量%硝酸17.2gを加え、メタ過 20 ヨウ素酸ナトリウムを含む水溶液を調製した。

10

15

8

請求の範囲

- 1. ヨウ素酸ナトリウム、ヨウ素酸またはそれらの混合物と次亜塩素酸ナトリウムを水酸化ナトリウムを用いて反応させて生成する反応混合物のpHをpH5以上10以下のpH範囲にすることを特徴とするパラ過ヨウ素酸二ナトリウムの製造方法。
- 2. ヨウ素酸ナトリウム、ヨウ素酸またはそれらの混合物と次亜塩素酸ナトリウムとの反応を水酸化ナトリウムの存在下に反応させ、次いで生成する反応混合物のpHをpH5以上7未満にすることを特徴とする請求項1に記載の製造方法。
- 3. pH範囲がpH5以上7未満である請求項1に記載の製造方法。
- 4. 次亜塩素酸ナトリウムの使用量がヨウ素酸ナトリウム、ヨウ素酸またはそれらの混合物中のヨウ素酸イオン1モル当たり1モル~3モルであり、水酸化ナトリウムの使用量が、ヨウ素酸ナトリウム1モル当たり0.5モル以上であり、ヨウ素酸1モル当たり1.5モル以上である請求項1に記載の製造方法。
- 5. 水酸化ナトリウムの使用量が、ヨウ素酸ナトリウム1モル当たり0.8モル以上であり、ヨウ素酸1モル当たり1.8モル以上である請求項4に記載の製造方法。
- 20 6. ヨウ素酸ナトリウム1モル当たりまたはヨウ素酸1モル当たりまたは両者の総計1モル当たりの水酸化ナトリウムの使用量が3モル以下である 請求項4または5に記載の製造方法。
- 7. 水酸化ナトリウムの使用量が、ヨウ素酸ナトリウム1モル当たり1モル以上であり、ヨウ素酸1モル当たり2モル以上である請求項6に記載の製造方法。
 - 8. ヨウ素酸ナトリウム、ヨウ素酸またはそれらの混合物が、メタ過ヨウ素酸ナトリウム、過ヨウ素酸またはそれらの混合物を酸化剤として有機化合物に反応させて生成するヨウ素酸ナトリウム、ヨウ素酸またはそれらの混合物である請求項1に記載の製造方法。

9. パラ過ヨウ素酸二ナトリウムを酸と接触させ得られる反応混合物のpHを2以上から2.5以下の範囲とレメタ過ヨウ素酸ナトリウムを製造する 更なる工程よりなる請求項1または2に記載の製造方法。

5

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER			PCT/JP2004/003491	
int.C.	17 C01B11/22			
According to I	nternational Patent Classification (IPC) or to both nat	ional classification and IPC		
B. FIELDS S	Mentation seembed ()			
Int.C]	umentation searched (classification system followed b	y classification symbols)		
•				
Documentation	searched other than minimum documentation to the Shinan Koho 1926–1996	extent that such documents are	included in the Solds	
Kokai .	Titower Ob!	TOTOKA OTCSAYO SILLIE	an Kono 1994-2004	
10001		Jitsuyo Shinan Torol	01 Koho 1996-2004	
Electronic data	base consulted during the international search (name	of data base and, where practic	able, search terms used)	
C DOOLD CO	NMC COLUMN			
C. DOCUME	NTS CONSIDERED TO BE RELEVANT			
Category*	Citation of document, with indication, where	appropriate, of the relevant pa	ssages Relevant to claim No	
A	JP 11-263602 A (DSM N V)		1-9	
	28 September, 1999 (28.09.9	9),.		
	Claims; Par. Nos. [0004] to & EP 913358 A & U	[0005]; examples	ł	
		S 6017506 A		
A	A JP 4-202001 A (Mitsui Toatsu Chemicals, Inc.),		10	
		inc.	1-9	
•	Claims; examples (Family: none)			
	(ramrry: none)			
A	US 4176167 A (The Dow Chemi	cal Co \		
ļ	1 27 November, 1979 (27 11 79)		1-9	
	Claims; examples			
	(Family: none)		ļ	
ĺ			1	
ł			,	
Further doc	numents are listed in the continuation of Box C.			
		See patent family ann	ex.	
to be of particular relevance		"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention		
" earlier applica filing date	ate "X" document of particular relevance: the old		evance: the alaimed in	
document wh	which may throw doubte an entire to the consideration in voice of califor be consideration in voice of califor be consideration.			
special reason	special reason (as specified) "Y" document of particular relevance: the c		evence: the eleiment income	
document refe	deciment reterring to an oral disclosure, use, exhibition or other means		e other such document is	
the priority da	USING DEAT TO the International City - 1-1-1	ouring dovidus to a person	skilled in the art	
		"&" document member of the s	ame patent family	
te of the actual of	completion of the international search	Date of mailing of the interna	ational search report	
oo oune,	2004 (08.06.04)	22 June, 2004	(22.06.04)	
ne and mailine	address of the ISA/			
Japanese	e Patent Office	Authorized officer		
simile No. PCT/ISA/210	(second sheet) (January 2004)	Telephone No.		
- 01/10/4210	(January 2004)			

			04/003491			
A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))						
Int C1' C01B11/22						
B. 調査を行った分野						
調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))						
Int C1' C01B11/22						
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの						
日本国実用新案公報 1926-1996年						
日本国公開実用新案公報 1971-2004年 日本国登録実用新案公報 1994-2004年						
日本国登録実用新案公報 1994-2004年 日本国実用新案登録公報 1996-2004年						
国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)						
C. 関連する	ると認められる文献					
引用文献の カテゴリー*			関連する			
77 	引用文献名 及び一部の箇所が関連する	ときは、その関連する箇所の表示	請求の範囲の番号			
A	JP 11-263602 A(ディーエスエム エ 求の範囲,【0004】-【0005】,実施の	ヌ. ブイ.)1999.9.28 特許請 別 &EP 913358 A &US 6017506 A	1 — 9			
A	JP 4-202001 A(三井東圧株式会社)1 施例(ファミリーなし)	1-9				
A	US 4176167 A(The Dow Chemical Com 範囲,実施例(ファミリーなし)	1-9				
□ C欄の続きにも文献が列挙されている。 □ パテントファミリーに関する別紙を参照。						
* 引用文献のカテゴリー 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表された文献で出願と矛盾するものではなく、発明の原理又の理解のために引用するもの「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみの新規性又は進歩性がないと考えられるもの「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他文献(理由を付す) 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願「&」同一パテントファミリー文献						
国際調査を完了	した日 08.06.2004	国際調査報告の発送日 22.	6. 2004			
日本国 郵	名称及びあて先 特許庁(ISA/JP) 便番号100-8915 千代田区段が関三丁目4番3号	特許庁審査官(権限のある職員) 大工原 大二 電話番号 03-3581-1101	4G 9343 内線 3416			